

33388B/05 E36 J01 NIKA-25.05.77  
 NIPPON KAGAKU KIJUT \*J53144-869  
 25.05.77-JA-050689 (16.12.78) B01d-53/24 B01j-08/12  
 Denitration reactor having reduced clogging tendency - has filtering  
 particle bed arranged before catalyst bed

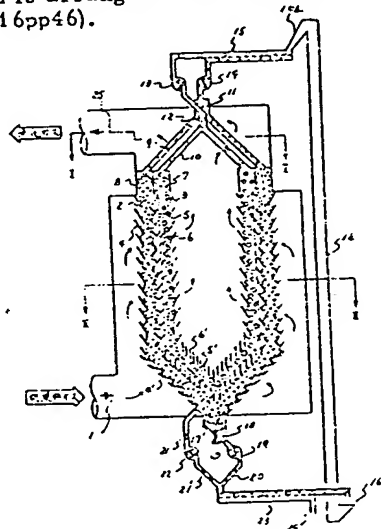
The reactor has double-walled cylindrical packed columns having opposite conical end beds. The filtering particles are filled into an outer packed column, while catalyst particles are filled into an inner packed column. A surrounding waste gas feed chamber is provided so that the waste gas to be treated is passed successively through the outer filtering particle bed and the inner catalyst particle bed.

A top gas outlet chamber surrounds the top conical end beds through which filtering and catalyst particles are fed to the outer and inner columns, so that fresh particles are preheated by heat-exchange with the treated gas. A dust separator separates dust from filtering and catalyst particles and, a vertical conveyor returns both types of particle to a top separator in which filtering particles are separated from the catalyst particles. Feeders are provided for distributing respective particles to the respective columns.

E(31-H1) J(1-E2B, 1-E2D) N(6-D).

194

To prevent clogging due to dust formation, the filtering particle bed is arranged before the catalyst bed.  
 (16pp46).



J53144869

⑨日本国特許庁

⑪特許出願公開

## 公開特許公報

昭53—144869

⑤Int. Cl.<sup>2</sup>

識別記号

⑥日本分類

庁内整理番号

⑬公開 昭和53年(1978)12月16日

B 01 D 53/34

1 0 7

13(7) A 11

7305—4 A

B 01 J 8/12

13(7) C 32

6639—4 A

発明の数 1

審査請求 未請求

(全 16 頁)

### ⑭脱硝反応器

⑱発明者 村岡昭郎

東大阪市稲田1147番地

同

塩川俊

茨木市上中条 1 丁目 8 番 33 号

⑲特 願 昭52—60689

⑳出 願 昭52(1977) 5 月 25 日

㉑発明者 原口阜裕

㉒出願人 日本化学技術株式会社

大阪市西区西本町 2 丁目 5 番 24 号

同

枚方市高野道 2 丁目 20 番地

畑山義男

橿原市見瀬町2123番地

### 明 細 書

#### 1. 発明の名称 脱硝反応器

#### 2. 特許請求の範囲

燃焼排ガス流中に、中空円筒と中空の逆円錐形（中空の正多角筒と中空の逆正多角錐でもよい。）を組み合わせた形状の充填層を隣接して二重に設置した構造を有する脱硝反応器において、該燃焼排ガス流上流側（外側）には、濾過材としての粒状物を、下流側（内側）には触媒を、それぞれ充填して、除塵層 2、脱硝層 3 を形成し、該燃焼排ガスを除塵層 2 外周より両層の中心にむかつて両層を横切る状態で流通させる形式の反応器であつて、該除塵層 2 および脱硝層 3 の上部に、脱硝反応により浄化された燃焼排ガスの保有する熱量を利用して、間接的に濾過材、触媒を加熱昇温させながら該除塵層 2 および脱硝層 3 に供給可能である濾過材、触媒 5、供給手段を有し、触媒は充填層内を上から下方 5、向に重力により移動させ、反応器下部から均等に抜き出せる排出手段と器外に抜き出した濾過

材、触媒に付着したダストを分別したのち、反 17訂正  
応器外の下部より上部へ循環搬送した上で、濾  
過材と触媒を分別して再び該両層に充填するた  
めダストを分別手段、循環搬送手段、および計 16年訂正  
別手段を有し、さらに該両層の濾過材、触媒 8年追加  
の供給、排出部に腐蝕のない良好な気密性を保 4年追加  
ちながら、供給、排出が行なえる手段を設けた  
構造を有していることを特徴とする脱硝反応器。

#### 3. 発明の詳細な説明

本発明は脱硝反応器、とくに燃焼排ガス中に含有されるダストを除去するために設けられた濾過材を充填した除塵層 2 と触媒を充填した脱硝層 3 を、中空円筒と中空の逆円錐形（中空の正多角筒と中空の逆正多角錐でもよいが、以下中空円筒と中空の逆円錐形とした場合について説明する。）を組み合わせた形状の充填層を隣接して二重に設置した構造とし、該両層内の濾過材、触媒は移動、排出を可能にし、濾過材、触媒に付着したダストを除去したのち、再び濾過材、触媒として使用することができる循環系統を有

する移動床方式の脱硝反応器に関する。

大気汚染の原因物質として、燃焼時に発生する窒素酸化物( $\text{NO}_x$ )を除去するための有効な装置の開発が切望されている。一般に $\text{NO}_x$ の除去は、触媒を用いて還元ガス(アンモニア)を注入し反応させる接触還元方式の反応装置(脱硝装置)が最も効果的な方法と考えられている。脱硝装置の中で最も重要な役割を果たす反応器が具備すべき条件としては、長期に安定した高い脱硝率を維持することである。脱硝を行なう場合の操作条件がそれらの条件に与える影響はいうまでもないが、とりわけ触媒機能を十分に発揮させると共に、初期の状態を維持し続けることが重要である。ところが一般の燃焼排ガス中には相当量のダストが含まれており、これが触媒表面に付着堆積し、触媒表面を覆い反応に有効な面積を減少させるとともに、ダスト中に含まれる有害物質により触媒活性を劣化させる原因となり、長期に安定した高い脱硝率を維持することが困難となる。

ダストが大気へ逸出することになる。

一方、固定床方式の上記問題を解決する方法として、脱硝反応を行なわせる触媒層の触媒自体を濾過材として兼用して<sup>327</sup>除塵する方法が提案されているが、この場合触媒層のガス上流側は、付着堆積したダストにより触媒表面が覆われ、脱硝反応に有効な触媒として寄与しにくいの、その分だけ余分に触媒を必要とするばかりでなく触媒は常時ダストに曝されおり、例えば触媒層を移動<sup>床</sup>にした場合には、クリーニング頻度<sup>14</sup>を多くしなければならず、触媒の摩耗粉化が激しい等の欠点が残る。

これらの欠点を解決する簡単な方法として、粒状触媒を充填した脱硝層と粒状の濾過材を充填した除塵層の二層を設ける方法も提案されているが、その多くは燃焼排ガス流に対して直角に配置された平板型(長方形もしくは正方形)で、この場合反応器のガス流路の中央部と周辺部(器壁近傍部)とでは、速度圧の差によりガスは中央部に多く流れ、周辺部は少くなくなる

従来、この対策として集塵装置を脱硝装置の上流側に設置し、処理すべき燃焼排ガスが反応器に流入されるまでに前以つて除塵する方法が提案されているが、一般に集塵装置は多大な設備費と保全費を要し、しかも触媒に悪影響を及ぼさない程度まで除塵効率を上げることは非常に困難である。

また、前以つて除塵を行なわずに脱硝を行なう方法の一つに、固定床方式の反応器で<sup>327</sup>ダストが<sup>13</sup>触媒層を通過させる方法が数多く試みられて<sup>327</sup>いるが、これらはいずれもダスト量が多すぎない場合においてさえ、徐々にダストが触媒層へ付着堆積して、脱硝率が低下するとともに、圧力損失が増大し、最悪な場合は運転不能になる等の問題があり、ダストを多量に含んだ燃焼排ガスについては使用できないといわれている。なお、この方法では反応器を通過したダストはそのまま大気へ放出される場合が多いので、ダストを多量に含んだ燃焼ガスについては、反応器下流において除塵しなければ有害物質を含む

という偏流現象がおこる。このことは脱硝率に大きな影響を及ぼす空間速度(GHSV)の変動を意味する、すなわち中央部における空間速度は大きくなり脱硝率は低下し、周辺部における空間速度は小さくなり脱硝率は増大するが、全体としては中央部での低下割合が大きく脱硝率は低下することとなる。また捕捉されるダスト量もガス流路の各部において不均一となる。一般にこれらの問題を解決する対策としては、ガスが均一に流れるように整流板を設けて調整する方法、反応器ダクト接続部から除塵層までの距離を長くしてガス流路各部の速度圧分布を平均化させる方法等が採られるが、通常いずれの場合もガス通過面の長径の1~3倍のガス導入・出部を必要とする。このことは本来反応器に与えない無駄な空間を必要とすることになり、反応器は大きくならざるを得ない。

従来より移動床方式の反応器には、触媒を吹き出す排出機の問題があるとされている。その問題とは通常反応器内部と大気との間には圧力

あるが、いまだ実機の再生手段を含む等の方法が中には、摩耗部分の機器類の保守点行えず、硫酸化ス処理する場合循環系統の機器類の欠点がある。

さらに、移動床は、定常運転時に応温度(通常30℃)で補給されるのれるまでは、脱硝りでなく、 $\text{SO}_x$ 充填中に流入する排ガス中の水分がこの水分に排ガス

内の<sup>14</sup>濾過材、触媒<sup>14</sup>過材・触媒に付着<sup>14</sup>内び<sup>14</sup>濾過材、触媒<sup>14</sup>循環系統を有するて、従来問題となとを特徴とする面

次に、本発明の照しながらガス流

第1図は本発明<sup>14</sup>示した<sup>14</sup>、第2b)はII-II部分実施例を模式的に連続的に移動さ<sup>14</sup>に連している場合<sup>14</sup>反応器の接続方向に<sup>14</sup>反応器内壁にそ<sup>14</sup>粒状濾過材を充填<sup>14</sup>形を組み合せた形<sup>14</sup>に隣接して設けた<sup>14</sup>の逆円錐形を組み

と脱硝装置の  
非ガスが反応  
する方法が  
直は多大な設  
に悪影響を及  
ることは非常

に脱硝を行な  
る装置で、  
く試みられて  
量があり多  
ダストが触媒  
するとともに、  
運転不能にな  
に含んだ燃焼  
いわれている。  
したダストは  
多いので、ダ  
ついては、反応  
害物質を含む

ことは脱硝率に  
( $GHV$ ) の変  
における空間速  
、周辺部におけ  
は増大するが、  
1台が大きく脱硝  
捕捉されるダス  
不均一となる。  
対策としては、  
板を設けて調整  
から除塵層まで  
の速度分布を  
るが、通常いずれ  
1〜3倍のガス導  
ことは本来反応に  
とすることになり、  
ない。  
器には、触媒を扱  
されている。その  
気との間には圧力

を抜き出す排出機は、ガス等の  
で触媒を排出することが必要で  
あるが、いまだ実用化に到っていないため、触  
媒の再生手段を含めた循環系統全体を密閉構造  
とする等の方法が採られている。この場合運転  
中には、摩擦部分が多い循環搬送手段を構成す  
る機器類の保守点検はもとより、触媒の補充も  
行えず、硫酸化合物 ( $SO_x$ ) を含む燃焼排ガ  
スを処理する場合には、触媒再生手段を含めた  
循環系統の機器類が腐食 (硫酸腐食) される等  
の欠点がある。

さらに、移動方式のもう一つの問題として  
は、定常運転時に触媒層に補給される触媒が反  
応温度 (通常  $300 \sim 450^\circ C$ ) に達しない状  
態で補給されるので、所定の温度に加熱昇温さ  
れるまでは、脱硝反応に有効に寄与しないばかり  
でなく、 $SO_x$  を含む排ガスが低温の触媒充  
填層中に流入するといわゆる露点現象によつて  
排ガス中の水分が触媒表面上で凝縮し、ついで  
この水分に排ガス中の  $SO_x$  が吸収されて硫酸

内の濾過材、触媒は移動、排出を可能にし、濾  
過材・触媒に付着したダストを除去したのち、  
再び濾過材、触媒として使用することができる  
循環系統を有する移動床式の脱硝反応器であつ  
て、従来問題となつていた点を全て解決したこ  
とを特徴とする画期的な脱硝反応器に存する。  
次に、本発明の脱硝反応器について図面を参  
照しながらガス流れに従い説明する。

第1図は本発明の実施例の縦断面を模式的に  
示した図で、第2図 (a) は I—I 部分で、(b) は II-II 部分でそれぞれ断面にした場合の  
実施例を模式的に示した図とし、濾過材、触媒  
を連続的に移動させる方法で、運転が定常状態  
に達している場合である。1 はガス導入口で反  
応器の縦断面方向に接続しており、燃焼排ガスは  
反応器内壁上にそつて流流状態で流入しながら、  
粒状濾過材を充填した中空円筒と中空の逆円錐  
形を組み合わせた形状の除塵層2と、除塵層内側  
に接続して設けた同構造の中空円筒と中空  
の逆円錐形を組み合わせた形状の充填層内に触媒

となり、この硫酸と触媒とが急激に反応して硫  
酸塩を生成し、また、この硫酸塩が触媒表面を  
腐蝕状態となして該表面へのダストの付着を容  
易にする等して触媒活性の劣化を助長させる欠  
点がある。

上記のことは全ての脱硝装置の運転開始時に  
もおこる好ましからざる現象であるが、いまだ  
解決されていない。

本発明者らは、上述の如き問題点を解決すべ  
く、種々の実験研究を重ねた結果、長期間安定  
した高い脱硝率を維持させることができる本発  
明を完成するに到つた。

本発明の要旨は、燃焼排ガス流中に中空円筒  
と中空の逆円錐形を組み合わせた形状の充填層  
を、隣接して二重に設置した構造を有し、該燃  
焼排ガス流上流側 (外側) には、濾過材として  
の粒状物を、下流側 (内側) には触媒を、それ  
ぞれ充填して除塵層2、脱硝層3を形成し、排  
ガスを除塵層2外周より両層の中心にむかつて  
両層を横切る状態で流通させる形式で、該両層

を充填した脱硝層3を、配した二重の充填層外  
周に到達する。除塵層2外周のガス流入部は、  
除塵層円筒ルーバ4および、除塵層逆円錐ルー  
バ4により、除塵層2と脱硝層3との隔壁は、  
円筒仕切弁および金5と、逆円錐仕切弁および金5  
により、脱硝層2内側のガス流出部は、脱硝層  
円筒ルーバ6および脱硝層逆円錐ルーバ6  
により、それぞれ構成されている。除塵層2  
および脱硝層3の上部は除塵層下部分配室8、  
脱硝層下部分配室7を隣接して二重に設け、除  
塵層2、脱硝層3に充填する濾過材、触媒を供  
給する濾過材供給シュート9、触媒供給シュ  
ート10 (各3〜12本) は、各下部分配室7、  
8の天井部に接続する状態で設ける。各下部分  
配室7、8の高さは、各供給シュート9、10  
により供給された濾過材、触媒がその落下方向  
に形成するそれぞれの堆積表面が水平線となす  
角度 (安息角) の交差する位置が各下部分配室  
7、8下端部より、各層の約1/2以上上方に位  
置するような適当な高さとしておけば、除塵層

2、脱硝層3上部に空隙が生ずるようなことはなく、したがって排ガスが濾過材、触媒と充分に接触せず流出する、いわゆるショートパス現象を防止しながら各層に分配することができる。

除塵層2、脱硝層3を通過した脱硝反応により浄化された燃焼排ガスは、触媒層下部分配室7内側の中空部を通過し、各供給シュート9、10と各下部分配室7、8天井部および、各供給シュート9、10を集合した除塵層上部分配室11、脱硝層上部分配室12の各部により形成された空間を、上記各部と接触しながら通過しガス導出口25より反応器外へ流出するが、その際、上記各部は接触した排ガスの保有する熱量により加熱昇温され、したがってそれらの内部に存在する濾過材、触媒も間接的に加熱昇温される。

次に濾過材、触媒の循環搬送順序に従い、第1図の濾過材、触媒排出部を模式的に示した第3図(a) (同主旨の第3図(b)でもかまわない。)をも参照しながら説明する。濾過材は

時間経過とともに増大する除塵層2を通過する際の排ガスの圧力損失が、所定の値を保持できる適当な移動速度で、除塵層中空円筒部から中空の逆円錐頂部に集められ、濾過材排出集合管17により反応器外へ導出し、政向層の中心線と同一線上に取付けられた回転円盤シャフト18cに、支持された回転円盤18bに到達する。到達した濾過材は、濾過材排出集合管17下端に設けられた排出量調整リング18a下端を基点した安息角(30°~60°)に相当する截頭円錐形の堆積を形成する。回転円盤18bは、回転円盤シャフト18cの中心とのなす角を、直角に対して少し傾斜させた角度(2°~10°)で取り付けられ、または直角に取り付けた回転円盤18b上に、表面が滑らかで、ゆるやかな曲線を持つ突起を取付けた構造とする。次に回転円盤18bを回転(0.2~20rpm)させると、傾斜円盤または突起の高所と低所との差に相当する空間容積分が、回転円盤18bの回転に応じて排出量調整リング18a下端と、回転円盤

の、触媒排出シュート  
出シュート21の取付  
取付等に必要な最小短  
ーバルブ22 (いずれ  
バルブと同一のもの)  
タリーバルブより排出  
に設けられた触媒排出  
ダスト分別機23に投  
媒は、濾過材と混合状  
分別するが、本ダスト  
循環搬送系統は上記に

本発明の脱硝反応器  
欠または連続移動方式  
定床方式、あるいは間  
処理対象となる燃焼排  
することが可能である。  
量に含んだ燃焼排ガス  
搬送方式、脱硝層3と  
式とすることが最も有  
る。また、第4図に示す

上面とによつて区切られた間隙から、放射線状に押し出され順次落下する。

従つて濾過材の排出量調整は、排出量調整リング18aの上下調整並びに、回転円盤18bの回転数を変化させることにより容易に行なうことができる、これら排出量調整リング18a以下の部分を総称して濾過材均等排出機18とする。均等排出機より排出させた濾過材は、濾過材排出ロータリーバルブ19 (例えば、実用新案願昭52-023206号明細書および図面参照)により、反応器内部への流体の流入流出を防止しながら、下部に設けた濾過材排出シュート20より排出させる。(触媒の排出機構については後記する)。排出された濾過材、触媒は、金網により上下2室に仕切られたトラフの上室を水平移動しながら、径径の差異を利用して網上に濾過材、触媒を、網下にダストをそれぞれ分別することが出来る。例えば、振動コンベア等のダスト分別機23を設け、濾過材、触媒に付着したダストを分別しダスト排出シュート24

からダストを系外に排出する。

ダスト分別機23より排出された濾過材、触媒は、バケットコンベアのような垂直方向に搬送することができる循環コンベア16により、反応器上部の所定の高さまで搬送する。循環コンベア16は、動力伝達部等の循環コンベア16ケーシング開口部を密閉構造とする必要はなく、循環コンベア投入口16aを開放しても何ら差し支えない。循環コンベア排出口16bより排出された濾過材、触媒はダスト分別機23と同様の機能を有する触媒濾過材分別機15に投入され網上には触媒を、網下には濾過材を、それぞれ分別し、濾過材、触媒は濾過材供給ロータリーバルブ14、触媒供給ロータリーバルブ15 (例えば、実用新案願昭52-023206号明細書および図面参照)により、反応器内部への流体の流入流出を防止しながら、除塵層上部分配室11、脱硝層上部分配室12、にそれぞれ供給し、循環系統を構成することとなる。一方触媒は中空の逆円錐頂部に設けた複数(3~8本)

も移動させるについて層外は問題ない。濾過材に化マグネシウム、アルミで安定なものであれば上限は触媒と同様であり、を対比した場合、触媒の径径に差を与えることに15、23、での分別を

次に濾過材、触媒を脱300~450℃)までれを暖機と称す。)を、同一層厚さとしたときの図、および除塵層2、脱過材、触媒の各層における図を含めて、参照しながら暖機に入る前に所定量のる。ここでいう所定量と除塵層排出部17から上

2を通過する  
値を保持でき  
円筒部から中  
材排出集合管  
両層の中心線  
に到達する。  
合管17下端  
8a下端を基  
当する截頭円  
18は、同  
なす角を、直  
2〜10°で  
付けた回転円  
るやかな曲線  
。次に回転円  
m)させると、  
との差に相当  
りの回転に  
と、回転円

の、触媒排出シュート21により、それぞれ排  
出シュート21の取付は、反応器壁を貫通させ  
取付等に必要の最小距離で触媒排出ロータリ  
ーバルブ22(いずれも濾過材排出ロータリ  
ーバルブと同一のもの)を設ける。触媒排出ロー  
タリ-バルブより排出された触媒は、その下部  
に設けられた触媒排出シュート21を通過して、  
ダスト分別機23に投入される。投入された触  
媒は、濾過材と混合状態になりながらダストを  
分別するが、本ダスト分別機23以後の触媒の  
循環搬送系統は上記に述べたので省略する。

本発明の脱硝反応器は、除塵層2にあつては間  
欠または連続移動方式を、脱硝層3にあつては固  
定床方式、あるいは間欠または連続移動方式を、  
処理対象となる燃焼排ガス性状に合わせて選定  
することが可能であるが、とりわけダストを多  
量に含んだ燃焼排ガスに対して、除塵層2は連  
続移動方式、脱硝層3は極く緩慢な連続移動方  
式とすることが最も有利に活用できることとな  
る。また、第4図に示すように時間経過による

濾過材、触媒  
直方向に搬送  
6により、な  
る、循環コン  
ベア16  
る必要はなく、  
しても何ら差  
126より排  
別機23と同  
15に投入さ  
材を、それぞ  
供給ロータリ  
ーバルブ25  
3206号明  
器内部への  
除塵層上部分配  
にそれぞれ供  
なる。一方吸  
気(3〜8a)

も移動させるについて障害となるようなもの以外  
は問題ない。濾過材については、けい石、炭  
化マグネシウム、アルミナ等、使用温度に対し  
て安定なものであればよく、形状についての制  
限は触媒と同様であり、粒径は、触媒と濾過材  
を対比した場合、触媒の方が大きく、例えば、触  
媒7〜15μmに対して、濾過材は2〜4μmとし、  
粒径に差を与えることにより、上記の各分別機  
15、23、での分別を容易に行なわせる。

次に濾過材、触媒を脱硝反応に適当な温度(300〜450℃)まで昇温する過程(以下こ  
れを暖機と称す。)を、除塵層2と脱硝層3を  
同一層厚さとしたときの第1図、第2図、第3  
図、および除塵層2、脱硝層3に充填された濾  
過材、触媒の各層における分布の変化を、除塵  
層2と脱硝層3を中心に模式的に表わした第5  
図を含めて、参照しながら説明を行なう。まず  
暖機に入る前に所定量の濾過材、触媒を用意す  
る。ここでいう所定量とは、濾過材については  
除塵層排出部17から上部分配室11内の所定

除塵層2(固定床方式並びに、触媒を濾過材と兼  
用させる方式では触媒層)を通過させる燃焼排  
ガスの所要圧力損失を、低目で大略一定の値で保  
持することが可能となる。従つてプロアもその  
値に対応した小さな所要動力のものでよい。本  
方式に対して固定床方式の反応器を用いた脱硝  
装置に使用するプロアは、定期修理等の理由に  
よる燃焼排ガス発生源の停止時まで運転を継続  
しなければならない必要上、所定の連続運転時間  
後に到達すると予想される大きな圧力損失の値  
を基本として選定することとなる。

したがつて所要動力の大きいプロアを使用す  
ることとなり非常に不経済なものとなる。

本発明の脱硝反応器に使用する触媒は、バナ  
ジウム、タングステン、クロム、コバルト、モ  
リブデン、マンガン、ニッケル、銅、鉄などの  
化合物を組み合わせたものか、またはそれらのも  
のをγ-アルミナなどの多孔質担体上に担持さ  
せたものなど、ごく通常の脱硝性能、機械的強  
度等を有するものであればよく、形状について

高さまで充填できる量と循環搬送系統内に滞留  
する量の合計量であり、触媒については、脱硝  
層排出シュート21から上部分配室11内の所定  
高さまで充填できる量と循環搬送系統内に滞留  
する量の合計量である。次いで濾過材の脱硝層  
3への充填作業から始める。本発明の脱硝反応  
器に燃焼排ガスを流通させない時点で、循環コ  
ンベア投入口16より搬送能力に応じて濾過  
材を投入して行く、濾過材はコンベア排出口  
より、触媒濾過材分別機15、触媒供給ロー  
タリ-バルブ13、脱硝層上部分配室12、  
触媒供給シュート10、脱硝層下部分配室7を  
順次經由して脱硝層3に達する。この場合触媒  
排出ロータリ-バルブ22は停止させておくの  
で濾過材が反応器外に排出されることはない。  
順次投入された濾過材により各触媒供給シュ  
ート10が充填された時点で、濾過材の投入を停  
止する。上記の濾過材充填作業中は、濾過材供  
給ロータリ-バルブ14を停止させ濾過材が除  
塵層2に流入するのを防止する。本実施例では

脱硝層 3 が除塵層 2 に内接しており、~~二層の層厚を同一の層厚とした場合の二層の層厚を比較する~~ 例えは、~~二層の層厚を比較する~~ 両層の充填容積を比較すると除塵層 2 の方が大きく、脱硝層 3 の方が小さい関係にあり、脱硝層 3 に充填された濾過材は両層の充填容積差に相当する容積分が余ることになる。次に余った濾過材を除塵層 2 に供給する、要領は上記脱硝層 3 に充填した場合と同様に、濾過材は運転状態となつた触媒濾過材分別機 15、濾過材供給ロータリーバルブ 14 を通過し除塵層上部分配室 11、濾過材供給シュート 9、除塵層下部分配室 8 を順次經由して除塵層 2 に達し、供給量に相当する幾何かの高さの除塵層を形成して暖機前の準備が完了する。  
(図 5(a) 参照) 次に上記に述べた流通経路により、燃焼排ガスを流通させ、除塵層 2 脱硝層 3 を通過した燃焼排ガスの保有する熱量により脱硝層上部分配室 12、触媒供給シュート 10、脱硝層下部分配室 7 内の濾過材が加熱昇温され、80℃ の露点温度以上 (200℃ 前後) となつた時点で、脱硝層 3 の移動 (濾過材を

特開昭53-144869(6) 排出させる)を開始すると共に、その排出量に見合った触媒を循環コンベア投入口 16 より投入し、上記の循環系統により脱硝層 3 へ触媒を供給し、脱硝層 3 内の濾過材を触媒に置換する。一方脱硝層 3 下部より排出された濾過材は、上記循環系統により除塵層 2 に充填する。(図 5(b) 参照) 従つて脱硝層 3 内の濾過材が触媒と完全に置換された時点で、暖機が完了したことになる。このように暖機時にいて脱硝層 3 に充填された濾過材は、常温から所定の反応温度までの間の 80℃ が凝縮現象をおこす温度域を回避するために触媒に代わる役割を果たすいわば身代り (ダミー) となるものであり、本例では濾過材を使用した場合を述べたが、本来ダミーとしての役割を果たせるものであれば、材料、形状、等に関しての制限はない。(図 5(c) 参照)

次に、本発明の脱硝反応器を用いて実験を行つた実施例を挙げて説明する。

#### 1 処理条件

- (1) 触媒：酸化鉄系触媒 粒径 5 ~ 15 mm  
移動速度 0.5 ~ 5 m/hr  
 $QHSV = 3000 \sim 10000$   
hr<sup>-1</sup>
- (2) 濾過材：酸化マグネシウム  
粒径 1 ~ 5 mm  
移動速度 4 ~ 40 m/hr
- (3) ガス性状：NOx 濃度 200 ~ 400 ppm  
SOx 濃度 600 ~ 1100 ppm  
ダスト量 2 ~ 4 g/Nm<sup>3</sup>
- (4) ガス温度：300 ~ 420℃
- (5) 反応ガス：アンモニア
- (6) 処理ガス量：1000 Nm<sup>3</sup>/hr

#### 2 処理結果

上記の条件下で長期連続運転を行ない、その処理後排ガスの NOx 濃度およびダスト量を測定したところ、NOx 濃度は 4 ~ 10 ppm (脱硝率 95% 以上)、ダスト量は、0.005 ~ 0.015 g/Nm<sup>3</sup> であつた。また使用後の触媒を調査したところ、SOx の減価による生成物の

存在は全くなく、触媒活性を低下させるダストの付着量も認められなかつた。

以上の説明の如く、本発明による脱硝反応器を使用すると、長期安定した高脱硝率を維持しながら運転を継続できるほか、下記のような利点をもたらす。

(1) 排ガスが除塵層および脱硝層を通過する面積が大きくとれる構造になつている。一般に脱硝層の排ガス通過面積は触媒充填容積を充填層厚で除した値であり、平板型脱硝層の通過面積は、平板の幅と高さの積で、また中空円筒型脱硝層の通過面積は中空円筒の円周すなわち中空円筒の平均径の円周率 ( $\pi \approx 3.14$ ) 倍の長ささと高さの積である。今仮りに触媒充填容積、充填層高さおよび厚さを一定とした場合、平板型脱硝層は中空円筒型脱硝層に比して、中空円筒の平均径の約 3 倍の大きさの幅を必要とし、逆に触媒充填容積、充填幅および厚さを一定とした場合、上記と同様に平板型脱硝層は中空円筒型脱硝層に比して約 3 倍の高さが必要となる。

したがつて、中空円筒型脱硝層に比してコンパクトになる脱硝反応器の除塵層および中空の逆円錐形を組み合はるに排ガス出口部分を除分が排ガス通過面として有るので、従来の平板型脱硝層に比して、結付面積および高る。また排ガスの偏流が完になつていないことにより、無駄な空間を不要にできる。

(2) 従来の固定床方式の如く燃焼排ガス中のダストが時間経過で脱硝層での排ガスの圧力損失といつた欠点がなく、定常運転で大略一定の値を保持して、上記の排ガスの通過面積になつていないことも相俟たずなブローが使用できる。自動的に再生処理 (ダスト分

3) 部のダスト分離、循環搬送)に具備すべき最小要素において、脱硝反応に寄与しない無駄なことができる。

(4) 除塵層および脱硝層のより浄化された燃焼排ガスを用いて、間接的に濾過材、ながら、該除塵層および脱硝層ができるような構造になつた脱硝運転開始時や低温の脱硝時に発生するトラブル)を完全に解消することが

(5) 除塵層および脱硝層の排出部に、ガス等の偏流の保ちながら、供給、排出がば特殊な構造を有するロータリーバルブ 2-023206、により、触媒の再生手段を必要としない必要はない。濾過材の入れ替え、補充や

昭53-144369の、その排出量に入口16より脱硝層3へ触媒を触媒に置換された濾過材は充填する。(図3内の濾過材が、暖機が完了した時に所定の反現象をおこす回わる役割を果たすものであり、本述べたが、本来であれば、特許はない。(以下用いて実施を行う。

したがって、中空円筒型脱硝層は平板型脱硝層に比してコンパクトになる。しかるに本発明の脱硝反応器の除塵層<sup>2</sup>および脱硝層<sup>3</sup>は、中空円筒<sup>2</sup>と中空の逆円錐形を組み合わせた形状であり、さらに排ガス出口部分を除く該両層の全ての部分が排ガス通過面として有効に利用されているので、従来の平板型脱硝層を具備する反応器に比して、据付面積および高さを大幅に簡便できる。また排ガスの偏流が完全に無視できる構造になつてることにより、反応に参与しない無駄な空間を不要にできる。

従来<sup>1</sup>の固定床方式の如く、運転開始時は燃焼排ガス中の<sup>2</sup>ダストが時間経過とともに堆積し、脱硝層での排ガスの圧力損失が徐々に増大するといつた欠点がなく、定常状態に達したあとは低目で大略一定の値を保持することができるので、上記の排ガスの通過面積が大きくとれる構造になつていことも相俟つて、所要動力の小さなプロパが使用できる。また、触媒は連続的、自動的に再生処理(ダスト分離)を行なうこと

ができるので、定期的に脱硝装置の運転を停止して、触媒を反応器外に取り出して再生し再充填する等の煩雑で不衛生な作業をなくすることができる。

除塵層を設けたことにより、従来の固定床方式や触媒層の触媒自体を濾過材として兼用して除塵する移動床方式の如く、触媒にダストが直接接触することではなく、触媒は除塵後の排ガスと接触することになるので、充填されている触媒が脱硝反応に有効に利用できる上に、触媒の移動速度としては極く小さな値が採れるので、移動させることによる触媒の摩耗、粉化を大幅に減少することができる。また、触媒排出機を反応器内の排ガス流通部と極めて接近させた最小寸法で取り付けることが可能であるから、従来提案されている通常の移動床方式の反応器に見られる如き、脱硝反応に干渉せずただ排出のみを目的としたホッパー部分をなくすることができることから、脱硝層上部の触媒の加熱昇温および均等供給、濾過材と触媒の分別、脱硝層下

低下させるダストによる脱硝反応器の脱硝率を維持し下記のような利

点を得る。一般に脱硝反応器の通過面また中空円筒型の円筒すなわち内部の触媒充填容積、とした場合、平板に比して、中空円筒の幅を必要とし、脱硝層は中空円筒の高さが必要となる。

部のダスト分離、循環搬送等移動床反応器として具備すべき最小要素における滞留分を除き、脱硝反応に参与しない無駄な触媒量を節減することができる。

除塵層および脱硝層の上部に、脱硝反応により浄化された燃焼排ガスの保有する熱量を利用して、間接的に濾過材、触媒を加熱昇温させながら、該除塵層および脱硝層に供給することができるような構造になつていことにより、脱硝運転開始時や低温の濾過材や触媒を供給するときに発生するトラブル(触媒活性の劣化等)を完全に解消することができる。

除塵層および脱硝層の濾過材、触媒の供給、排出部に、ガス等の漏洩のない良好な気密性を保ちながら、供給、排出が行なえる手段、例えば特殊な構造を有するロータリバルブ(実用新案願昭52-023206号)を具備することにより、触媒の再生手段を含めた循環搬送系統は密閉構造にする必要はなく、運転中に触媒、濾過材の入れ替え、補充や摩耗部分の多い循環

搬送手段を構成する機器類の保守点検が可能であり、80℃による硫酸腐食を回避し、系統内の保固断熱を不要とすることができる。

#### 4 図面の簡単な説明

第1図は、本発明の脱硝反応器の実施例の縦断面を模式的に示す図、第2図(a)は第1図のI-I部分で切断した平面図、(b)は第1図のII-IIの部分で切断した平面図、第3図(a)は第1図の一部(触媒、濾過材排出部)拡大断面図、(b)は中心部に触媒排出機構を設け、外周部に濾過材排出機構を設けた場合の実施例を模式的に示した縦断面図、第4図は縦軸に固定床方式および触媒を濾過材と兼用させる移動床方式にあつては脱硝層の、また本発明と同様除塵層と脱硝層両層をもつ移動床方式にあつてはその両層を燃焼排ガスが通過する際の圧力損失を示し、横軸に時間経過を示した図表であり、固定床方式と移動床方式の各脱硝反応器を対比して、時間経過に伴う圧力損失の変化を示した図表、第5図は定常運転以前の前準

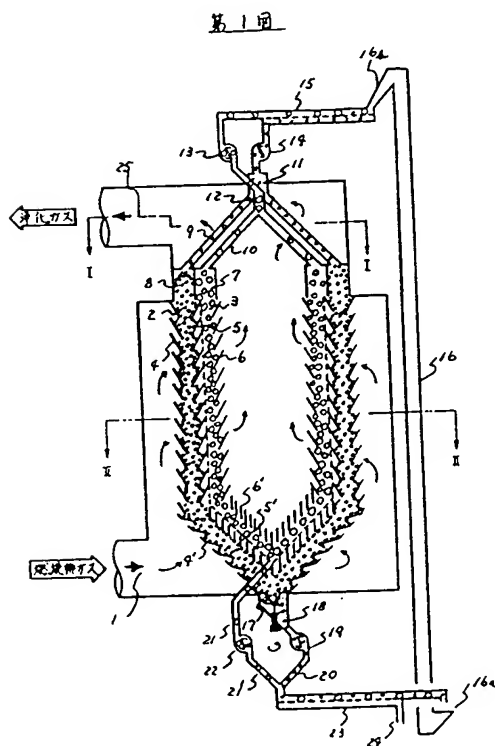
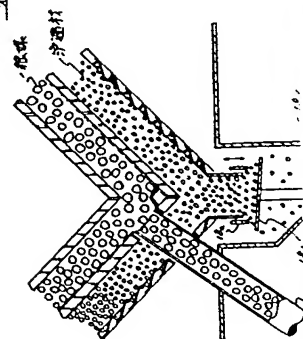
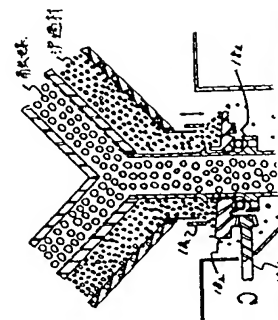


備および暖機時における濾過材、触媒の各層内の分布状態を兩層を中心として模式的に示した断面図である。

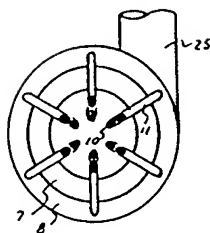
- 1: ガス導入口 2: 除塵層 3: 脱硝層  
4: 除塵層円筒ルーバ 4': 除塵層逆円錐ルーバ 5: 円筒仕切枠および金網 5': 逆円錐仕切枠および金網 6: 脱硝層円筒ルーバ 6': 脱硝層逆円錐ルーバ 7: 除塵層下部分配室  
8: 脱硝層下部分配室 9: 濾過材供給シュート 10: 触媒供給シュート 11: 除塵層上部分配室 12: 脱硝層上部分配室 13: 濾過材供給ロータリーバルブ 14: 触媒供給ロータリーバルブ 15: 触媒濾過材分別機  
16: 循環コンベア 16a: 循環コンベア投入口 16b: 循環コンベア排出口 17: 濾過材排出集合管 18: 濾過材均排出機 18a: 排出量調整リング 18b: 回転円盤 18c: 回転円盤シャフト 18d: 均等排出機構  
18e: 回転円盤支持ベアリング 18f: 回転円盤駆動シャフト 19: 濾過材

特開昭53-144869(8)  
排出ロータリーバルブ 20: 濾過材排出シュート 21, 21': 触媒排出シュート 22: 触媒排出ロータリーバルブ 23: ダスト分別機 24: ダスト排出シュート 25: ガス導出口

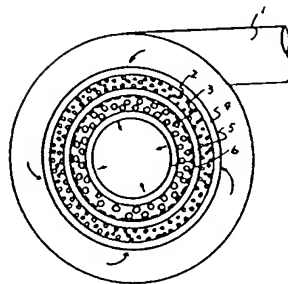
特許出願人 日本化学技術株式会社  
代表者 佐野司朗



第2図  
(a)



(b)



## 手続補正

特許庁長官 照 谷 君

1 事件の表示 昭和52年特許願

2 発明の名称 フォスゲン 脱硝反応器

3 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住所(居所) フォスゲン株式会社  
大阪府西區西本町一丁目  
(電話: 〇六三二)

氏名(名称) 日本化学工業株式会社  
代表者

4 補正命令の日附 自発補正

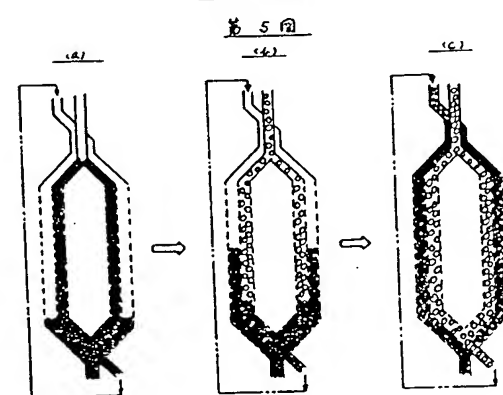
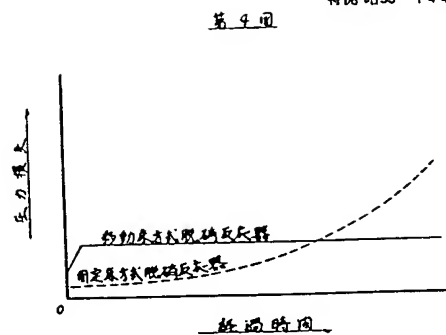
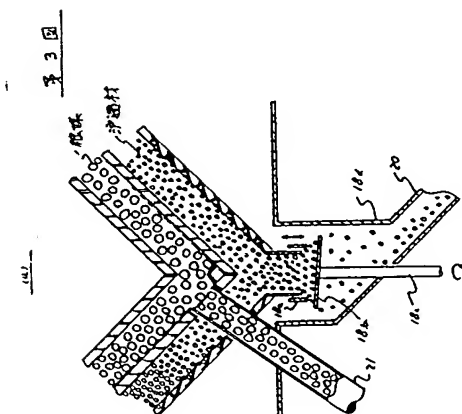
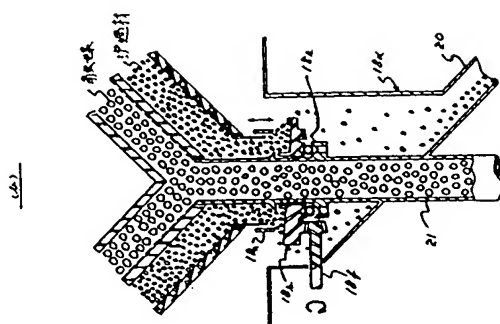
5 補正により増加する発明の数

6 補正の対象 引 出 荷

7 補正の内容 特許請求の範囲の

特許53-144869(8)  
：濾過材排出シ  
シュート 22：  
23：ダスト分別  
ト 25：ガス導

化学技術株式会社  
代表者 佐野司朗



## 手続補正書

昭和53年3月17日

特許庁長官

第52号

1 事件の表示 昭和52年特許願 願第40489号

2 発明の名称 脱硝反応器

3 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住所(居所) 大阪府大阪市西本町2丁目5番24号  
(電話 06-(531)-0275)

氏名(名称) 日本化学技術株式会社  
代表者 佐野司朗

4 補正命令の日附 自発補正

5 補正により増加する発明の数

6 補正の対象 明細書

7 補正の内容 序言の9行別紙のとおり明細書を全文補正す

明 細 書

1 発明の名称 脱硝反応器

2 特許請求の範囲

燃焼排ガス流中に、中空円筒と中空の逆円錐形(中空の正多角筒と中空の逆正多角錐でもよい。)を組み合わせた形状の充填層を隣接して二重に設置した構造を有する脱硝反応器において、該燃焼排ガス流上流側(外側)には、濾過材としての粒状物を、下流側(内側)には触媒を、それぞれ充填して、除塵層2、脱硝層3を形成し、該燃焼排ガスを除塵層2外周より内層の中心にむかつて内層を横切る状態で流通させる形式の反応器であつて、該除塵層2および脱硝層3の上部に、脱硝反応により浄化された燃焼排ガスの保有する熱量を利用して、間接的に濾過材、触媒を加熱昇温せながら該除塵層2および脱硝層3に供給することが可能である濾過材、触媒供給手段を有し、また濾過材、触媒は充填層内を上から下方向に重力により移動させ、反応器下部から均等に抜き出せる排出手段

と器外に抜き出した濾過材、触媒に付着したダストを分別したのち、反応器外の下部より上部へ循環搬送した上で、濾過材と触媒を分別して再び該兩層に充填するためのダスト分別手段、循環搬送手段、および濾過材と触媒の分別手段を有し、さらに該兩層の濾過材、触媒の供給、排出部にガス等の漏洩のない良好な気密性を保ちながら、供給、排出が行なえる手段を設けた構造を有していることを特徴とする脱硝反応器。

### 5 発明の詳細な説明

本発明は脱硝反応器、とくに燃焼排ガス中に含有されるダストを除去するために設けられた濾過材を充填した除塵層2と触媒を充填した脱硝層3を、中空円筒と中空の逆円錐形（中空の正多角筒と中空の正多角錐でもよいが、以下中空円筒と中空の逆円錐形とした場合について説明する。）を組み合わせた形状の充填層を隣接して二重に設置した構造とし、該兩層内の濾過材、触媒は移動、排出を可能にし、濾過材、触媒に付着したダストを除去したのち、再び濾過

材、触媒として使用することができる循環搬送を有する移動床方式の脱硝反応器に関する。

大気汚染の原因物質として、燃焼時に発生する窒素酸化物（ $\text{NOx}$ ）を除去するための有効な装置の開発が切望されている。一般に $\text{NOx}$ の除去は、触媒を用いて還元ガス（アンモニア）を注入し反応させる接触還元方式の反応装置（脱硝装置）が最も効果的な方法と考えられている。脱硝装置の中で最も重要な役割を果たす反応器が具備すべき条件としては、長期に安定した高い脱硝率を維持することである。脱硝を行なう場合の操作条件がそれらの条件に与える影響はいうまでもないが、とりわけ触媒性能を十分に発揮させると共に、初期の状態を維持し続けることが重要である。ところが一般の燃焼排ガス中には相当量のダストが含まれており、これが触媒表面に付着堆積し、触媒表面をばい反応に有効な面積を減少させるとともに、ダスト中に含まれる有害物質により触媒活性を劣化させる原因となり、長期に安定した高い脱硝率を

維持することが困難となる。

従来、この対策として集塵装置を脱硝装置の上流部に設置し、処理すべき燃焼排ガスが反応器に流入されるまでに前以つて除塵する方法が提案されているが、一般に集塵装置は多大な設備費と保全費を要し、しかも触媒に悪影響を及ぼさない程度まで除塵効率を上げることは非常に困難である。

また、前以つて除去を行わずに脱硝を行なう方法の一つに、固定床方式の反応器で触媒層をダストが通過する方法が数多く試みられているが、これらはいずれもダスト量が多すぎない場合においてさえ、徐々にダストが触媒層へ付着堆積して、脱硝率が低下するとともに、圧力損失が増大し、悪化する場合は運転不能になる等の問題があり、ダストを多量に含んだ燃焼排ガスについては使用できないといわれている。なお、この方法では反応器を通過したダストはそのままだけ大気へ放出される場合が多いので、ダストを多量に含んだ燃焼ガスについては、反応

器下流において除塵しなければ有害物質を含むダストが大気へ逸出することになる。

一方、固定床方式の上記問題を解決する方法として、脱硝反応を行なわせる触媒層の触媒自体を濾過材として兼用させて除塵する方法が提案されているが、この場合触媒層のガス上流側は、付着堆積したダストにより触媒表面が覆われ、脱硝反応に有効な触媒として寄与しにくいので、その分だけ余分に触媒を必要とするばかりでなく触媒は常時ダストに曝されおり、例えば触媒層を移動床にした場合には、クリーニング頻度を多くしなければならず、触媒の摩耗劣化が激しい等の欠点がある。

これらの欠点を解決する簡単な方法として、粒状触媒を充填した脱硝層と粒状の濾過材を充填した除塵層の二層を設ける方法も提案されているが、その多くは燃焼排ガス流に対して直角に設置された平板型（長方形もしくは正方形）で、この場合反応器のガス流路の中央部と周辺部（器壁近傍部）とでは、速度圧の差によりガ

スは中央部に多く流すという偏流現象が大きな影響を及ぼすことを意味する、すなわち速度は大きくなり脱硝する空間速度は小さくなり全体としては中央部率は低下することとダスト量もガス流路の各層に均一にこれらの問題をガスが均一に流れるようにする方法、反応器ダクトの距離を長くしてガス平均化させる方法等がある場合もガス通過面の入・出部を必要とする関与しない無駄な空間反応器は大きくなりだ

従来より移動床方式を出す排出側に問題が

この水分に排ガス中のとなり、この腐蝕と触媒層を生成し、また、腐蝕状態となして該装置に等して触媒活性点がある。

上記のことは全てのもみこる好ましからざる解決されていない。

本発明者らは、上述の如く、種々の実験研究をした高い脱硝率を維持し、明を完成するに到つた。

本発明の要旨は、中空の逆円錐形を組み、併接して二重に設置した燃焼排ガス流上流側（外）の粒状物を、下流側（内）それぞれ充填して除塵層2、触媒層3を形成し、ガス

特開昭53-144869(II)  
とができる循環系統  
反応器に関する。

て、燃焼時に発生す  
る除去するための有効  
である。一般に $NO_x$   
モガス（アンモニア  
還元方式の反応装置  
と方法と考えられて  
る重要な役割を果た  
すことは、長期に安定し  
てである。脱硝を行  
うの条件に与える影  
りかけ給煤係能を十  
分の状態を維持し得  
ることが一般の燃焼排  
気に含まれており、こ  
れは燃焼表面を覆い反  
らとともに、ダスト  
の燃焼活性を劣化さ  
せしめた高い脱硝率を

スは中央部に多く流れ、周辺部は少なくなる  
という偏流現象がおこる。このことは脱硝率に  
大きな影響を及ぼす空間速度（ $Q/H \times V$ ）の変  
動を意味する、すなわち中央部における空間速  
度は大きくなり脱硝率は低下し、周辺部にかけ  
る空間速度は小さくなり脱硝率は増大するが、  
全体としては中央部での低下割合が大きく脱硝  
率は低下することとなる。また捕捉されるダスト  
量もガス流路の各部において不均一となる。  
一般にこれらの問題を解決する対策としては、  
ガスが均一に流れるように壁流板を設けて調整  
する方法、反応器ダクト接続部から除塵層まで  
の距離を長くしてガス流路各部の速度圧分布を  
平均化させる方法等が採られるが、通常いずれ  
の場合もガス通過面の長径の1~3倍のガス導  
入・出口を必要とする。このことは本来反応に  
関与しない無駄な空間を必要とすることになり、  
反応器は大きくならざるを得ない。

従来より移動床方式の反応器には、触媒を抜  
き出す排出機に問題があるとされている。その

特開昭53-144869(II)  
問題とは通常反応器内部と大気との間には圧力  
差があり、触媒を抜き出す排出機は<sup>ガス</sup>ガスを等<sup>三字</sup>等の  
潤滑のない状態で触媒を排出することが必要で  
あるが、いまだ実用化に到っていないため、触  
媒の再生手段を含めた循環系統全体を密閉構造  
とする等の方法が採られている。この場合運転  
中には、摩耗部分が多い循環搬送手段を構成す  
る機器類の保守点検はもとより、触媒の補充も  
行えず、硫酸化合物（ $SO_x$ ）を含む燃焼排ガ  
スを処理する場合には、触媒再生手段を含めた  
循環系統の機器類が腐食（硫酸腐食）される等  
の欠点がある。

さらに、移動床方式のもう一つの問題として  
は、定常運転時に触媒層に補給される触媒が反  
応温度（通常300~450℃）に達しない状  
態で補給されるので、所定の温度に加熱昇温さ  
れるまでは、脱硝反応に有効に寄与しないばか  
りでなく、 $SO_x$ を含む排ガスが低温の触媒充  
填層中に流入するといわゆる露点現象によつて  
排ガス中の水分が触媒表面上で凝縮し、ついで

れば有害物質を含む  
ことになる。

問題を解決する方法  
せる触媒層の触媒自  
て除塵する方法が提  
触媒層のガス上流側  
より触媒表面が覆わ  
れとして寄与しにくい  
触媒を必要とするばか  
に曝されおり、例え  
合には、クリーニン  
らず、触媒の摩耗が  
。

簡単な方法として、  
と粒状の濾過材を充  
る方法も提案されて  
ガス流に対して直角  
形もしくは正方形）  
流路の中央部と周辺  
速度圧の差によりガ

この水分に排ガス中の $SO_x$ が吸収されて硫酸  
となり、この硫酸と触媒とが急激に反応して硫酸  
塩を生成し、また、この硫酸塩が触媒表面を  
覆った状態となして触媒表面へのダストの付着を  
容易にする等して触媒活性の劣化を助長させる欠  
点がある。

上記のことは全ての脱硝装置の運転開始時に  
もみこる好ましくない現象であるが、いまだ  
解決されていない。

本発明者らは、上述の如き問題点を解決すべ  
く、種々の実験研究を重ねた結果、長期に安定  
した高い脱硝率を維持させることができる本発  
明を完成するに至った。

本発明の要旨は、燃焼排ガス流中に中空円筒  
と中空の逆円錐形を組み合わせた形状の充填層  
を、併接して二重に設置した構造を有し、該燃  
焼排ガス流上流側（外筒）には、濾過材として  
の粒状物を、下流側（内筒）には触媒を、それ  
ぞれ充填して除塵層2、脱硝層3を形成し、排  
ガスを除塵層2外周より内筒の中心にむかつて

内筒を横切を状態で流通させる形式で、該内筒  
内の濾過材、触媒は移動、排出を可能にし、濾  
過材・触媒に付着したダストを除去したのち、  
再び濾過材、触媒として使用することができる  
循環系統を有する移動床式の脱硝反応器であつ  
て、従来問題となつていた点を全て解決したこ  
とを特徴とする画期的な脱硝反応器に存する。

次に、本発明の脱硝反応器について図面を参  
照しながらガス流れに従い説明する。

第1図は本発明の実施例の縦断面を模式的に  
示した図で、第2図（a）はI-I部分で、（  
b）はII-II部分でそれぞれ断面にした場合の  
実施例を模式的に示した図とし、濾過材、触媒  
を連続的に移動させる方法で、運転が定常状態  
に達している場合である。1はガス導入口で反  
応器の接続方向に接続しており、燃焼排ガスは  
反応器内壁にそつて過流状態で流入しながら、  
粒状濾過材を充填した中空円筒と中空の逆円錐  
形を組み合わせた形状の除塵層2と、除塵層内側  
に隣接して設けた同様な構造の中空円筒と中空

の逆円錐形を組み合せた形状の充填層内に触媒を充填した脱硝層3を、配した二重の充填層外周に到達する。除塵層2外側のガス流入部は、除塵層円筒ルーバ4および、除塵層逆円錐ルーバ4'により、除塵層2と脱硝層3との隔壁は、円筒仕切弁および金網5と、逆円錐仕切弁および金網5'により、脱硝層2内側のガス流出部は、脱硝層円筒ルーバ6および脱硝層逆円錐ルーバ6'により、それぞれ構成されている。除塵層2および脱硝層3の上部は除塵層下部分配室8、脱硝層下部分配室7を隣接して二重に設け、除塵層2、脱硝層3に充填する濾過材、触媒を供給する濾過材供給シュート9、触媒供給シュート10(各3~12本)は、各下部分配室7、8の天井部で接続する状態で設ける。各下部分配室7、8の高さは、各供給シュート9、10により供給された濾過材、触媒がその落下方向に形成するそれぞれの堆積表面が水平線となす角度(安息角)の交差する位置が各下部分配室7、8下部より、各層厚の約1/2以上上方に位

置するような適当な高さとしておけば、除塵層2、脱硝層3上部に空隙が生ずるようなことはなく、したがって排ガスが濾過材、触媒と充分接触せず流出する、いわゆるショートパス現象を防止しながら各層に分配することができる。

除塵層2、脱硝層3を通過した脱硝反応により浄化された燃焼排ガスは、触媒層下部分配室7内側の中空部を通過し、各供給シュート9、10と各下部分配室7、8天井部および、各供給シュート9、10を集合した除塵層上部分配室11、脱硝層上部分配室12の各部により形成された空間を、上記各部と接触しながら通過しガス導出口25より反応器外へ流出するが、その際、上記各部は接触した排ガスの保有する熱量により加熱昇温され、したがってそれらの内部に存在する濾過材、触媒も間接的に加熱昇温される。

次に濾過材、触媒の循環搬送順序に従い、第1図の濾過材、触媒排出部を模式的に示した第3図(a)(同主旨の第3図(b)でもかまわ

付設したダストを分別4からダストを系外にダスト分別機23より排出し、例えばベケットコンベヤに搬送することができ、反応器上部の所定の環コンベヤ16は、動力16ケーシング開口ではなく、循環コンベヤも何ら差し支えない。且より排出された濾過材23と同様機能を有するに投入され網上には触媒それぞれ分別し、濾過材ロータリーバルブ14、配管15(例えば、実用第6号明細書および図面参照)部への流体の流出入を防部分配室11、脱硝層上それぞれ供給し、循環系統を

ない。)をも参照しながら説明する。濾過材は時間経過とともに増大する除塵層2を通過する際の排ガスの圧力損失が、所定の値を保持できる適当な移動速度で、除塵層中空円筒部から中空の逆円錐頂部に集められ、濾過材排出集合管17により反応器外へ導出され、該両層の中心線と同一線上に取付けられた回転円盤シャフト18cに、支持された回転円盤18bに到達する。到達した濾過材は、濾過材排出集合管17下端に設けられた排出量調整リング18a下端を基点とした安息角(30~60°)に相当する載頭円錐形の堆積を形成する。回転円盤18bは、回転円盤シャフト18cの中心となす角を、直角に対して少し傾斜させた角度(2~10°)で取り付けるか、または直角に取り付けた回転円盤18b上に、曲面が滑かで、ゆるやかな曲線を持つ突起を取付けた構造とする。次に回転円盤18bを回転(0.2~20rpm)させると、傾斜円盤または突起の高所と低所との差に相当する空間容積分が、回転円盤18bの回転

に応じて排出量調整リング18a下端と、回転円盤上面とによつて区切られた間隙から、放射線状に押し出され順次落下する。

従つて濾過材の排出量調整は、排出量調整リング18aの上下調整並びに、回転円盤18bの回転数を変化させることにより容易に行なうことができる。これらの排出量調整リング18a以下部分を総称して濾過材均等排出機18とする。均等排出機より排出させた濾過材は、濾過材排出ロータリーバルブ19(例えば、実用新案願昭52-023206号明細書および図面参照)により、反応器内部への流体の流出入を防止しながら、下部に設けた濾過材排出シュート20より排出させる。(触媒の排出機構については後記する)排出された濾過材、触媒は、金網により上下2室に仕切られたトラフの上室を水平移動しながら、粒径の差異を利用して網上に濾過材、触媒を、網下にダストをそれぞれ分別することが出来る。例えば、振動コンベヤ等のダスト分別機23を設け、濾過材、触媒に

連続移動床方式とすることとなる。また、間経過による除塵層2に堆積した濾過材と兼用させる過させる際の排ガスの所大略一定の値で保持するつてプロアもその値に對のものでよい。本方式に反応器を用いた脱硝装置に期修理等の理由による燃時まで運転を継続しなけ所定の連続運転時間後に過大な圧力損失の値を基となる。

したがって所要動力のこととなり非常に不経済本発明の脱硝反応器にジウム、タンクステン、リブデン、マンガン、ニ化合物を組み合せたもの

特開昭53-144869 (12) としておけば、除塵層3が生ずるようなことは、 $\mu$ が濾過材、触媒と充分つゆるショートパス現象を配することができる。を通過した脱硝反応による、触媒層下部分配室し、各供給シュート9、8天井部および、各供給集合した除塵層上部分配室12の各部により形各部と接触しながら通過反応器外へ流出するが、触した排ガスの保有するれ、したがってそれらの、触媒も間接的に加熱昇

循環搬送順序に従い、第3図(b)でもかまわ

付着したダストを分別しダスト排出シュート24からダストを系外に排出する。ダスト分別機23より排出された濾過材、触媒は、例えばバケットコンベアのような垂直方向に搬送することができる循環コンベア16により、反応器上部の所定の高さまで搬送する、循環コンベア16は、動力伝達部等の循環コンベア16ケーシング開口部を密閉構造とする必要はなく、循環コンベア投入口16aを開放しても何ら差し支えない。循環コンベア排出口16bより排出された濾過材、触媒はダスト分別機23と同様機能を有する触媒濾過材分別機15に投入され網上には触媒を、網下には濾過材を、それぞれ分別し、濾過材、触媒は濾過材供給ロータリーバルブ14、触媒供給ロータリーバルブ15（例えば、実用新案願52-023204号明細書および図面参照）により、反応器内部への流体の流出入を防止しながら、除塵層上部分配室11、脱硝層上部分配室12、にそれぞれ供給し、循環系統を構成することとなる。

一方触媒は中空の逆円錐頂部に設けた複数（3～8本）の、触媒排出シュート21により、それぞれ排出させる。触媒排出シュート21は、反応器壁を貫通させ取付等に必要な最小距離で取付け、その下部に触媒排出ロータリーバルブ22（いずれも濾過材排出ロータリーバルブと同一のもの）を設ける。触媒排出ロータリーバルブより排出された触媒は、その下部に設けられた触媒排出シュート21を通過して、ダスト分別機23に投入される。投入された触媒は、濾過材と混合状態になりながらダストを分別するが、本ダスト分別機23以後の触媒の循環搬送系統は上記に述べたので省略する。

本発明の脱硝反応器は、除塵層2にあつては固定床方式、あるいは間欠または連続移動床方式を、処理対象となる燃焼排ガス性状に合わせて選定することが可能であるが、とりわけダストを多量に含んだ燃焼排ガスに対して、除塵層2は連続移動床方式、脱硝層3は極く緩慢な

ング18a下端と、回転切られた間隙から、放射落下する。調整は、排出量調整リング18bの回転により容易に行なりこの排出量調整リング18a以下排出量調整リング18とす排出された濾過材は、濾過レブ19（例えば、実用新206号明細書および図面参照）内部への流体の流出入を設けた濾過材排出シュート（触媒の排出機構）に排出された濾過材、触媒は仕切られたトラフの上室、粒径の差異を利用して網、網下にダストをそれぞれる。例えば、振動コンベア3を設け、濾過材、触媒に

連続移動床方式とすることが最も有利に活用できることとなる。また、第4図に示すように時間経過による除塵層2（固定床方式並びに、触媒を濾過材と兼用させる方式では触媒層）を通過させる際の排ガスの所要圧力損失を、低目で大略一定の値で保持することが可能となる。従つてプロアもその値に対応した小さな所要動力のものでよい。本方式に対して固定床方式の反応器を用いた脱硝装置に使用するプロアは、定期修理等の理由による燃焼排ガス発生源の停止時まで運転を継続しなければならない必要上、所定の連続運転時間後に到達すると予想される過大な圧力損失の値を基本として選定することとなる。

したがって所要動力の大きいプロアを使用することとなり非常に不経済なものとなる。

本発明の脱硝反応器に使用する触媒は、バナジウム、タングステン、クロム、コバルト、モリブデン、マンガン、ニッケル、銅、鉄などの化合物を組み合わせたものか、またはそれらのも

のを、 $\gamma$ -アルミナなどの多孔質担体上に担持させたものなど、ごく通常の脱硝性能、機械的強度等を有するものであればよく、形状についても移動させるについて障害となるようなもの以外は問題ない。濾過材については、けい石、酸化マグネシウム、アルミナ等、使用温度に対して安定なものであればよく、形状についての制限は触媒と同様であり、粒径は、触媒と濾過材を対比した場合、触媒の方が大きく、例えば、触媒7～15mmに対して、濾過材は2～4mmとし、粒径に差を与えることにより、上記の各分別機15、23、での分別を容易に行なわしめ得る。

次に濾過材、触媒を脱硝反応に適当な温度（300～450℃）まで昇温する過程（以下これを暖機と称す。）を、除塵層2と脱硝層3を同一層厚としたときの第1図、第2図、第3図、および除塵層2、脱硝層3に充填された濾過材、触媒の各層における分布の変化を、除塵層2と脱硝層3を中心に模式的に表わした第5

図を含めて、参照しながら説明を行なう。まず吸機に入る前に所定量の濾過材、触媒を用意する。ここでいう所定量とは、濾過材については除塵層排出部17から上部分配室11内の所定高さまで充填できる量と循環搬送系統内に滞留する量の合計量であり、触媒については、脱硝層排出シュート21から上部分配室12内の所定高さまで充填できる量と循環搬送系統内に滞留する量の合計量である。次いで濾過材の脱硝層3への充填作業から始める。本発明の脱硝反応器に燃焼排ガスを流通させない時点で、循環コンベア投入口16より搬送能力に応じて濾過材を投入して行く、濾過材はコンベア排出口16より、触媒濾過材分別機15、触媒供給ロータリーバルブ13、脱硝層上部分配室12、触媒供給シュート10、脱硝層下部分配室7を順次経由して脱硝層3に達する。この場合触媒排出ロータリーバルブ22は停止させておくので濾過材が反応器外に排出されることはない。順次投入された濾過材により各触媒供給シユー

ト10が充填された時点で、濾過材の投入を停止する。上記の濾過材充填作業中は、濾過材供給ロータリーバルブ14を停止させ濾過材が除塵層2に流入するのを防止する。本実施例では脱硝層3が除塵層2に内接しており、例えば該両層を同一の層厚とした場合の両層の充填容積を比較すると除塵層2の方が大きく、脱硝層3の方が小さい関係にあり、脱硝層3に充填された濾過材は両層の充填容積差に相当する容積分が余ることになる。次に余った濾過材を除塵層2に供給する、要領は上記脱硝層3に充填した場合と同様に、濾過材は運転状態となつた触媒濾過材分別機15、濾過材供給ロータリーバルブ14を通過し除塵層上部分配室11、濾過材供給シュート9、除塵層下部分配室8を順次経由して除塵層2に達し、供給部に相当する高さの除塵層を形成して吸機前の単位が完了する。(第5図-(c)参照)次に上記に述べた流通経路により、燃焼排ガスを流通させ、除塵層2脱硝層3を通過した燃焼排ガスの保有

定したところ、N脱硝率95%以上0.015% / Nm<sup>3</sup>を調査したところの存在、触媒活性積および摩耗粉化以上の説明の如を使用すると、長しながら運転を継続点をもたらす。

(d)排ガスが除塵層が大きくとれる硝層の排ガス通過厚さで除した値で積は、平板の幅と脱硝層の通過面積空円筒の平均径のさと高さの積であ充填層高さおよび、型脱硝層は中空円

する熱量により脱硝層上部分配室12、触媒供給シュート10、脱硝層下部分配室7内の濾過材が加熱昇温され、80℃の露点温度以上(200℃前後)となつた時点で、脱硝層3の移動(濾過材を排出させる)を開始すると共に、その排出量に見合った触媒を循環コンベア投入口16より投入し、上記の循環系統により脱硝層3へ触媒を供給し、脱硝層3内の濾過材を触媒に置換する。一方脱硝層3下部より排出された濾過材は上記循環系統により除塵層2に充填する。(第5図-(b)参照)従つて脱硝層3内の濾過材が触媒と完全に置換された時点で、吸機が完了したことになる。このように吸機時において脱硝層3に充填された濾過材は、常温から所定の反応温度までの間の80℃が最良現象をおこす温度域での劣化現象を回避するため触媒に代わる役割を果たすいわば身代り(ダミー)となるものであり、本例では濾過材を使用した場合を述べたが、本来ダミーとしての役割を果たせるものであれば、特に材質、形状、等に

関しての制限はない。(第5図-(c)参照)

次に、本発明の脱硝反応器を用いて実施を行なつた実施例を挙げて説明する。

#### 1 処理条件

(1)触媒：酸化鉄系触媒 粒径5~15mm  
移動速度 0.1~5m/hr  
QHSV=3000~10000  
hr<sup>-1</sup>

(2)濾過材：酸化マグネシウム

粒径1~5mm  
移動速度4~40m/hr

(3)ガス性状：NOx濃度 200~400ppm  
80℃濃度 600~1100ppm  
ダスト量 2~4g/Nm<sup>3</sup>

(4)ガス温度：300~420℃

(5)反応ガス：アンモニア

(6)処理ガス量：1000Nm<sup>3</sup>/hr

#### 2 処理結果

上記の条件下で長期連続運転を行ない、その処理済排ガスのNOx濃度およびダスト量を測

きるので、上記のれる構造になつて力の小さなプロア連続的、自動的になうことができる。転を停止して、触生し再充填する等すことができる。

(3)除塵層を設け方式や触媒層の触て除塵する移動床直接接することとスと接すること触媒が脱硝反応にの移動速度として移動させることに減少することが反応器内の排ガス小寸法で取り付け米提案されている



特開昭53-144869(14)

て、濾過材の投入を停止  
作業者は、濾過材供  
を停止させ濾過材が除  
止する。本実施例では  
接しており、例えば該  
た場合の両層の充填容  
の方が大きく、脱硝層  
り、脱硝層3に充填さ  
容積差に相当する容積  
に余った濾過材を除く  
上記脱硝層3に充填し  
は運転状態となつた  
濾過材供給ロータリーバ  
上部分配室11、濾過  
層下部分配室8を順次  
供給に相当する容積  
成して暖房前の準備が  
(a)参照)次に上記に  
燃焼排ガスを流通させ、  
した燃焼排ガスの保有

(第5図-(c)参照)  
反応器を用いて実験を行  
説明する。

触媒 粒径5~15mm  
 $0.1 \sim 5 \text{ m/hr}$   
 $= 3000 \sim 10000$   
 $\text{hr}^{-1}$

ネシウム

5mm

$4 \sim 40 \text{ m/hr}$

濃度  $200 \sim 400 \text{ ppm}$

度  $600 \sim 1100 \text{ ppm}$

$\times 2 \sim 4 \text{ m/hr}$

$\sim 420^\circ\text{C}$

ニフ

$0.0 \text{ Nm}^3/\text{hr}$

1連続運転を行ない、その  
濃度およびダスト量を調

定したところ、NOx濃度は4~10ppm(脱硝率95%以上)、ダスト量は、 $0.005 \sim 0.015 \text{ g/Nm}^3$ であつた。また使用後の触媒を調査したところ、80xの膜層による生成物の存在、触媒活性を低下させるダストの付着堆積および摩耗粉化は全く認められなかつた。

以上の説明の如く、本発明による脱硝反応器を使用すると、長期間安定した高脱硝率を維持しながら運転を継続できるほか、下記のような利点をもたらす。

(1)排ガスが除塵層および脱硝層を通過する面積が大きくとれる構造になつている。一般に脱硝層の排ガス通過面積は触媒充填容積を充填層厚さで除した値であり、平板型脱硝層の通過面積は、平板の幅と高さの積で、また中空円筒型脱硝層の通過面積は中空円筒の円周すなわち中空円筒の平均径の円周率( $\pi \approx 3.14$ )倍の長さ<sup>一字訂正</sup>と高さの積である。今仮りに触媒充填容積、充填層高さおよび厚さを一定とした場合、平板型脱硝層は中空円筒型脱硝層に比して、中空円

特開昭53-144869(15)

筒の平均径の約3倍の大きさの幅を必要とし、逆に触媒充填容積、充填層および厚さを一定とした場合、上記と同様に平板型脱硝層は中空円筒型脱硝層に比して約3倍の高さが必要となる。したがつて、中空円筒型脱硝層は平板型脱硝層に比してコンパクトになる。しかるに本発明の脱硝反応器の除塵層2および脱硝層3は、中空円筒と中空の逆円錐形を組み合わせた形状であり、さらに排ガス出口部分を除く該両層の全ての部分が排ガス通過面として有効に利用されているので、従来の平板型脱硝層を具備する反応器に比して、据付面積および高さを大幅に節減できる。また排ガスの偏流が完全に無視できる構造になつていることにより、反応に因与しない無駄な空間を不要にできる。

(2)従来の固定床方式の如く、運転開始時点より燃焼排ガス中のダストが時間経過とともに堆積し、脱硝層での排ガスの圧力損失が徐々に増大するといった欠点がなく、定常状態に達したあとは低目で大略一定の値を保持することがで

きるので、上記の排ガスの通過面積が大きくとれる構造になつていることも相俟つて、所要動力の小さなブロアが使用できる。また、触媒は連続的、自動的に再生処理(ダスト分別)を行なうことができるので、定期的に脱硝装置の運転を停止して、触媒を反応器外に取り出して再生し再充填する等の煩雑で不衛生な作業をなくすることができる。

(3)除塵層を設けたことにより、従来の固定床方式や触媒層の触媒自体を濾過材として兼用して除塵する移動床方式の如く、触媒にダストが直接接触することとはなく、触媒は除塵後の排ガスと接触することになるので、充填されている触媒が脱硝反応に有効に利用できる上に、触媒の移動速度としては極く小さな値が採れるので、移動させることによる触媒の摩耗、粉化を大幅に減少することができる。また、触媒排出機を反応器内の排ガス流通部と極めて接近させた最小寸法で取り付けることが可能であるから、従来提案されている通常の移動床方式の反応器に

見られる如き、脱硝反応に因与せずただ排出のみを目的としたホッパー部分をなくすることができることから、脱硝層上部の触媒の加熱昇温および均等供給、濾過材と触媒の分別、脱硝層下部のダスト分別、循環搬送等移動床反応器として具備すべき最小要素における節減分を除き、脱硝反応に因与しない無駄な触媒量を節減する<sup>一字訂正</sup>ことができる。

(4)除塵層および脱硝層の上部に、脱硝反応により浄化された燃焼排ガスの保有する熱量を利用して、間接的に濾過材、触媒を加熱昇温させることができるような構造になつていることにより、脱硝運転開始時や低温の濾過材および触媒を供給するときに発生するトラブル(触媒活性の劣化等)を完全に解消することができる。

(5)除塵層および脱硝層の濾過材、触媒の供給、排出部に、ガス等の偏流のない良好な気密性を保ちながら、供給、排出が行なえる手段、例えば特殊な構造を有するロータリーバルブ(実用新



案願昭52-023206号)を具備することにより、触媒の再生手段を含めた循環搬送系統は密閉構造にする必要はなく、運転中に触媒、濾過材の入れ替え、補充や摩耗部分の多い循環搬送手段を構造する機器類の保守点検が可能であり、80℃による硫酸腐食を回避し、系統内の保温断熱を不要とすることができる。

#### 4. 図面の簡単な説明

第1図は、本発明の脱硝反応器の実施例の縦断面を模式的に示す図、第2図(a)は第1図のI-I部分で切断了した平面図、(b)は第1図のII-II部分で切断了した平面図、第3図(a)は第1図の一部(触媒、濾過材排出部)拡大断面図、(b)は中心部に触媒排出機構を設け、外周部に濾過材排出機構を設けた場合の実施例を模式的に示した縦断面図、第4図は縦軸に固定床方式および触媒を濾過材と兼用させる移動床方式にあつては脱硝層の、また本発明と同様除塵層と脱硝層両層をもつ移動床方式にあつてはその両層を燃焼排ガスが通過する際の圧

力損失を示し、横軸に時間経過を示した図表であり、固定床方式と移動床方式の各脱硝反応器を対比して、時間経過に伴う圧力損失の変化を示した図、第5図は定常運転以前の前準備および暖機時における濾過材、触媒の各層内の分布状態を両層を中心として模式的に示した断面図である。

1:ガス導入口 2:除塵層 3:脱硝層  
4:除塵層円筒ルーバ 4':除塵層逆円錐ルーバ  
5:円筒仕切弁および金網 5':逆円錐仕切弁および金網 6:脱硝層円筒ルーバ 6':脱硝層逆円錐ルーバ  
7:除塵層下部分配室 8:脱硝層下部分配室 9:濾過材供給シュート  
10:触媒供給シュート 11:除塵層上部分配室 12:脱硝層上部分配室 13:濾過材供給ロータリーバルブ  
14:触媒供給ロータリーバルブ 15:触媒濾過材分別機  
16:循環コンベア 16a:循環コンベア投入口 16b:循環コンベア排出口 17:濾過材排出集合管 18:濾過材均排出機 18<sup>等</sup> 18<sup>手</sup> 18<sup>挿入</sup>

a:排出量調整リング 18b:回転円盤  
18c:回転円盤シャフト 18d:均等排出機構ケーシング 18e:回転円盤支持ベアリング 18f:回転円盤駆動シャフト 19:濾過材排出ロータリーバルブ 20:濾過材排出シュート 21, 21':触媒排出シュート  
22:触媒排出ロータリーバルブ 23:ダスト分別機 24:ダスト排出シュート 25:ガス導出口

訂正

特許出願人 日本化学技術株式会社  
代表者 佐野司朗